PCT WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6 :
F01N 3/28, B01J 35/04

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/01648

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 14. Januar 1999 (14.01.99)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/04086

(22) Internationales Anmeldedatum: 2. Juli 1998 (02.07.98)

(30) Prioritätsdaten:
97111323.8 4. Juli 1997 (04.07.97) EP

(71) Anmelder *(für alle Bestimmungsstaaten ausser US)*: SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D–80333 München (DE).

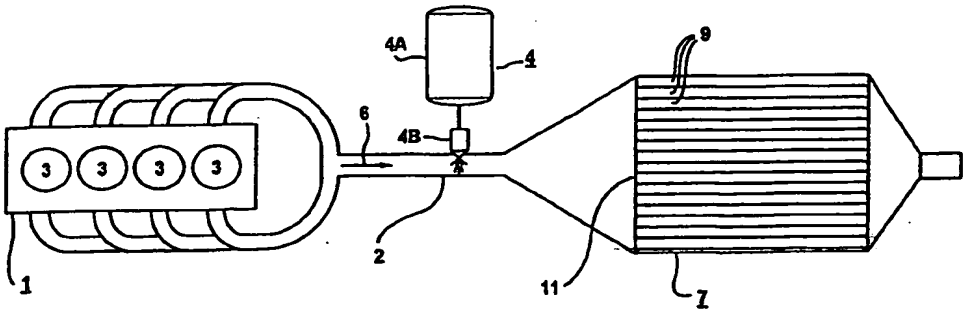
(72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder *(nur für US)*: NEUFERT, Ronald [DE/DE]; Alfred–Schefczik–Strasse 3, D–96247 Michelau (DE). HOFMANN, Lothar [DE/DE]; Klosterstrasse 48, D–96264 Altenkunstadt (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht
Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: ALVEOLATE CATALYST AND METHOD FOR CLEANING EXHAUST GAS FROM AN AIR EXCESS–DRIVEN COMBUSTION ENGINE

(54) Bezeichnung: WABENFÖRMIGER KATALYSATOR UND VERFAHREN ZUR REINIGUNG EINES ABGASES AUS EINEM MIT LUFTÜBERSCHUSS BETRIEBENEN VERBRENNUNGSMOTOR



(57) Abstract

In order to eliminate contaminants in exhaust gas from an air excess–driven combustion engine (1) with a given engine capacity (3), an alveolate catalyst (7) is disclosed as well as a method consisting in feeding said exhaust gas via an exhaust pipe (2) into the catalyst (7). Adapting the catalyst volume (7) and the hydraulic diameter of its flow channels (9) to the engine capacity (3) of the combustion engine (1) enables the exhaust gas back pressure to be reduced due to a high contaminant conversion rate and a mitigated occlusion trend, with no engine capacity loss.

(57) Zusammenfassung

Zur Entfernung von Schadstoffen aus einem Abgas eines mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotors (1) mit einem vorgegebenen Hubraum (3) wird ein wabenförmiger Katalysator (7) und ein Verfahren angegeben, bei dem das Abgas durch ein Abgasrohr (2) in den Katalysator (7) geleitet wird. Durch eine Anpassung des Volumens des Katalysators (7) und des hydraulischen Durchmessers seiner Strömungskanäle (9) auf den Hubraum (3) des Verbrennungsmotors (1) kann bei hoher Schadstoffumsatzrate und geringer Verstopfungstendenz gleichzeitig ein geringer Abgasgegendruck erzielt werden, der die Motorleistung des Verbrennungsmotors (1) nicht mindert.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Beschreibung

Wabenförmiger Katalysator und Verfahren zur Reinigung eines Abgases aus einem mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotor

Die Erfindung betrifft einen wabenförmigen Katalysator und ein Verfahren zur katalytischen Entfernung von Schadstoffen aus einem Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, beispielsweise eines Dieselmotors oder eines Magermix-Benzinmotors. Derartige Schadstoffe sind z.B. Stickoxide, Schwefeloxide, Kohlenmonoxid und Kohlenwasserstoffe, aber auch Dioxine, Furane und andere organische Verbindungen.

Bei dem Betrieb eines Verbrennungsmotors können in nicht unerheblichen Umfang die genannten Schadstoffe entstehen, welche über das Abgas an die Umwelt abgegeben werden und dort Schäden anrichten können. Auch ein Verbrennungsmotor, der mit Luftüberschuß arbeitet, beispielsweise ein Dieselmotor oder ein Magermix-Benzinmotor, gibt solche Schadstoffe bei der Verbrennung eines Treibstoffes an die Umwelt ab.

Um die von einem mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotor an die Umwelt abgegebenen Schadstoffe zu reduzieren, sind in der Vergangenheit eine Vielzahl von Katalysatoren entwickelt worden. So ist zur Verringerung von Stickoxiden im Abgas eines derartigen Verbrennungsmotors beispielsweise die Verwendung eines sogenannten DeNOx - Katalysators bekannt, welcher nach dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion (SCR) die Stickoxide mit einem geeigneten Reduktionsmittel, meist Ammoniak, zu umweltfreundlichem Stickstoff und Wasser umsetzt.

Auch wurden bezüglich der Geometrie des jeweils verwendeten Katalysators verschiedentlich Überlegungen angestellt, um

eine Verstopfung des Katalysators durch die im Abgas eines mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotors enthaltenen unverbrannten Partikel oder Rußteilchen zu vermeiden.

So ist speziell zur Verringerung von im Abgas eines Dieselmotors enthaltenen sogenannten SOF, d.h. von in organischen Lösungsmitteln löslichen, organischen Komponenten, in der EP 0 382 434 B1 ein Reinigungsverfahren beschrieben, bei dem das Abgas des Dieselmotors durch einen bienenwabenartigen Katalysator, der Zellen parallel zur Strömungsrichtung des Abgases besitzt, geleitet wird. Die einzelnen, durchgehenden Zellen besitzen dabei einen hydraulischen Durchmesser von 1,00 bis 2,00 mm, wobei der Querschnitt der Anströmfläche des Katalysators 10 bis 100 cm^2 pro Liter Hubraum des Dieselmotors beträgt. Der Prozentsatz des offenen, vom Abgas durchströmbaren Bereiches der Anströmfläche beträgt 40 bis 95%.

Nachteiligerweise eignet sich jedoch auch der angegebene Katalysator nur zum Einsatz im Abgas eines Dieselmotors, bei dem bereits motorseitige Primärmaßnamen zur Verringerung des Partikelausstoßes , z.B. in Form von Rußteilchen, getroffen sind. Weiterhin bewirkt der angegebene Katalysator einen erhöhten Abgasgegendruck, der zur Minderung der Motorleistung und zu einem Kraftstoffmehrverbrauch führt.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, mittels eines vielseitig verwendbaren, wabenförmigen Katalysators aus dem Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors die dort enthaltenen Schadstoffe zu entfernen. Auch im Abgas eines üblichen Dieselmotors soll ein effektiver katalytischer Abbau der Schadstoffe stattfinden, wobei aber eine Verstopfung des Katalysators und ein Abgasgegendruck, der die Motorleistung stark vermindern würde, praktisch vermieden werden soll.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß durch einen wabenförmigen Katalysator mit einer Anzahl paralleler Strömungskanäle zur Reinigung eines Abgases eines mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotors mit vorgegebenen Hubraum gelöst, wobei das Verhältnis des Volumens des Katalysators zum Hubraum des Verbrennungsmotors zwischen 0,5 und 8,0, der hydraulische Durchmesser der Strömungskanäle zwischen 1 und 4 mm und der Prozentsatz des offenen, frontalen Bereiches am Einlaß des Katalysators zwischen 45 und 95% beträgt.

Bei dem entsprechenden Verfahren wird das Abgas eines mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotors mit vorgegebenen Hubraum mit einer Temperatur zwischen 100 und 700°C durch einen wabenförmigen Katalysator mit einer Anzahl paralleler Strömungskanäle geleitet wird, wobei der offene, frontale Bereich am Einlaß des Katalysators höchstens 95% und mindestens 45% beträgt, die Strömungskanäle einen hydraulischen Durchmesser zwischen 1 und 4 mm besitzen und das Verhältnis des Katalysatorvolumens zum Hubraum des Verbrennungsmotors zwischen 0,5 und 8,0 beträgt.

Dabei wird prinzipiell unter der Anströmfläche die senkrecht zur Strömungsrichtung des Abgases liegende Gesamtfläche der Anströmseite des Katalysators und unter dem Prozentsatz des offenen, frontalen Bereiches das Verhältnis aus Anströmfläche und Gesamtquerschnittsfläche der Strömungskanäle in Prozent verstanden. Der hydraulische Durchmesser ist definiert als die vierfache Querschnittsfläche eines Strömungskanals, dividiert durch seinen Umfang.

Die Erfindung geht von der Überlegung aus, daß durch einen derartigen Katalysator, dessen Volumen spezifisch auf den Hubraum des Verbrennungsmotors angepaßt ist, eine hohe Schadstoffumsatzrate bei gleichzeitig niedrigem Abgasgegendruck und niedriger Verstopfungstendenz erzielt wird. Aufgrund des

niedrigen Abgasgegendrucks wird die Motorleistung des Verbrennungsmotors nicht gemindert und der Einsatz eines derartigen Katalysators zieht keinen Kraftstoffmehrverbrauch nach sich.

Der wabenförmige Katalysator kann dabei als ein Oxidations-Katalysator mit an sich bekannter Zusammensetzung zur Oxidation unverbrannter Kohlenwasserstoffe, Kohlenmonoxid oder von Dioxinen oder Furanen ausgebildet sein. Auch kann der wabenförmige Katalysator als ein Reduktionskatalysator bekannter Zusammensetzung zur Entfernung von Stickoxiden ausgebildet sein.

Um den Abgasgegendruck am Katalysator zu minimieren und so die Minderung der Motorleistung zu verringern, liegt das Verhältnis des Katalysatorsvolumens zum Hubraum des Verbrennungsmotors zwischen 0,5 und 8,0. Vorzugsweise liegt das Verhältnis zwischen 1,0 und 5,0. Bei einem Verhältnis kleiner als 0,5 muß eine relativ große Abgasmenge ein kleines Volumen des Katalysators durchströmen, so daß der Abgasgegendruck am Katalysator steigt. Darüberhinaus verschlechtert sich der Abscheidegrad für die im Abgas enthaltenen Schadstoffe. Bei einem Verhältnis von über 8,0 wird der wabenförmige Katalysator zu großvolumig, um insbesondere bei nichtstationären Anwendungen im PKW-Bereich eingesetzt zu werden.

Liegt der Prozentsatz des offenen, frontalen Bereiches der Einlaßseite des Katalysators unterhalb von 45%, so steigt der Abgasgegendruck, bedingt durch die dann verkleinerte offene Querschnittsfläche der Strömungskanäle an, während die mechanische Stabilität des Katalysators bei einem Prozentsatz oberhalb von 95% aufgrund der dünnen Wandstärke der einzelnen Strömungskanäle stark eingeschränkt ist. Vorteilhaft wird der Prozentsatz des offenen, frontalen Bereiches der Einlaßseite des Katalysators zwischen 60 und 85% gewählt.

Um weiterhin den Druckabfall am Katalysator zu vermindern, weisen die parallelen Strömungskanäle einen hydraulischen Durchmesser zwischen 1 und 4 mm auf. Bei einem hydraulischen Durchmesser von unter 1 mm steigt die Tendenz der Strömungskanäle, sich mit im Abgas enthaltenen Rußteilchen zuzusetzen und so die katalytische Aktivität des Katalysator zu verringern. Bei einem hydraulischen Durchmesser der Strömungskanäle von mehr als 4 mm sinkt die katalytische Umsetzung von Schadstoffen im Katalysator ebenfalls, da die Kontakthäufigkeit der im Abgas mitgeführten Schadstoffe mit der Katalysatoroberfläche abnimmt.

Für einen effektiven Abbau von im Abgas enthaltenen Stickoxiden ist es vorteilhaft, wenn der wabenförmige Katalysator als ein DeNOx-Katalysator ausgeführt ist, an dem u.a. im Abgas enthaltene Stickoxide mit einem zuvor in das Abgas eingebrachten Reduktionsmittel, beispielsweise Ammoniak, nach dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion (SCR) katalytisch zu Stickstoff und Wasser umgesetzt werden.

Als Reduktionsmittel können dabei selbstverständlich auch Substanzen verwendet werden, welche erst nach dem Einbringen in das Abgas das eigentliche Reduktionsmittel freisetzen. Eine derartige Substanz ist beispielsweise Harnstoff, aus welchem Ammoniak freigesetzt wird.

In Strömungsrichtung des Abgases vor dem DeNOx-Katalysator befindet sich vorteilhafterweise eine Dosiereinrichtung zur Zudosierung des Reduktionsmittels in den Abgasstrom. Dabei kann das Reduktionsmittel eingedüst, eingespritzt oder eingeblasen werden. Hierfür kann beispielsweise eine entsprechend ausgelegte, steuer- oder regelbare Düse vorgesehen sein. Der wabenförmige Katalysator kann an übliche, mit Luftüberschuß betriebene Verbrennungsmotoren, insbesondere an Dieselmotoren oder an Magermix-Benzinmotoren, angeschlossen werden.

Die Erfindung hat den Vorteil, daß aufgrund des geringen Abgasgegendrucks keine Beeinträchtigung der Motorleistung zu erwarten ist. Der Einbau des wabenförmigen Katalysators führt daher zu einem vernachlässigbaren Kraftstoffmehrverbrauch des Verbrennungsmotors, während der Kraftstoffmehrverbrauch bei Systemen gemäß dem Stand der Technik noch zwischen 5 und 20% liegt.

Nachfolgend wird ein Ausführungsbeispiel der Erfindung anhand einer Figur näher erläutert, welche eine schematische Darstellung eines Dieselmotors mit einem zugeordneten wabenförmigen Katalysator zeigt.

In der Figur ist als ein mit Luftüberschuß arbeitender Verbrennungsmotor 1 ein Dieselmotor gezeigt, welcher über ein Abgasrohr 2 mit einem wabenförmigen Katalysator 7 verbunden ist, der eine Anzahl von Strömungskanälen 9 aufweist, die zur Strömungsrichtung 6 eines Abgases parallel ausgerichtet sind.

Der Katalysator 7 ist dabei als ein DeNOx-Katalysator auf TiO_2-Basis ausgeführt, der als katalytisch aktives Material eine oder mehrere der Substanzen V_2O_5, WoO_3 und MoO_3 umfaßt. Ein derartiger DeNOx-Katalysator reduziert die im Abgas enthaltenen Stickoxide nach dem SCR-Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion mit Hilfe eines Reduktionsmittels, beispielsweise Ammoniak, zu Stickstoff und Wasser.

Das im Dieselmotor erzeugte Abgas strömt je nach Betriebszustand des Motors mit einer Temperatur von 100 bis 700 °C durch das Abgasrohr 2 in den Katalysator 7. Bezogen auf die Strömungsrichtung des Abgases ist vor dem Katalysator 7 im Abgasrohr 2 eine Dosiereinrichtung 4 angebracht. Die Dosiereinrichtung 4 umfaßt dabei einen Reduktionsmitteltank 4A und eine daran angeschlossene, steuerbare Düse 4B, durch welche das sich im Reduktionsmitteltank befindliche Reduktionsmittel

in das durch das Abgasrohr 2 strömende Abgas eingedüst wird. Dies kann beispielsweise mit Hilfe von Druckluft geschehen. Dabei wird das Reduktionsmittel mit dem Abgas innig vermischt.

Als Reduktionsmittel wird Harnstoff verwendet, welcher sich unter den im Abgas herrschenden Bedingungen teilweise zu Ammoniak umwandelt. Zur Unterstützung der Umwandlung kann ein nicht näher gezeigter Hydrolysekatalysator zwischen der Dosiereinrichtung 4 und dem DeNOx-Katalysator 7 angeordnet sein.

Hinter der Dosiereinrichtung 4 mündet das Abgasrohr 2 in den Katalysator 7, der auf seiner Einlaßseite eine Anströmfläche 11 aufweist. Das Verhältnis des Volumens des Katalysators 7 zum Hubraum 3 des Dieselmotors beträgt 4.0.

Das aus dem Dieselmotor 1 strömende Abgas passiert die senkrecht zur Strömungsrichtung 6 stehende Anströmfläche 11 des Katalysators 7, deren Größe sich aus dem Volumenverhältnis ergibt. Der Prozentsatz der Anströmfläche 11, der von Abgas und Reduktionsmittel durchströmt werden kann, beträgt 80%.

Die vom Abgas und dem Reduktionsmittel durchströmbaren, parallelen Strömungskanäle 9 haben einen hydraulischen Durchmesser von 2 mm.

Patentansprüche

1. Wabenförmiger Katalysator(7), mit einer Anzahl von parallelen Strömungskanälen (9), zur Reinigung eines Abgases eines mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotors (1) mit einem vorgebbaren Hubraum (3),
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das Verhältnis des Volumens des Katalysators (7) zum Hubraum (3) des Verbrennungsmotors (1) zwischen 0,5 und 8,0, der hydraulische Durchmesser der Strömungskanäle (9) zwischen 1 und 4 mm und der Prozentsatz des offenen frontalen Bereichs am Einlaß des Katalysators zwischen 45 und 95% beträgt.

2. Katalysator nach Anspruch 1,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das Verhältnis des Volumens des Katalysators (7) zum Hubraum (3) des Verbrennungsmotors (1) zwischen 1,0 und 5,0 beträgt.

3. Katalysator nach Anspruch 1 oder 2,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der hydraulische Durchmesser der Strömungskanäle (9) zwischen 1,2 und 2,5 mm beträgt.

4. Katalysator nach einem der Ansprüche 1 bis 3,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der Prozentsatz des offenen frontalen Bereichs zwischen 60 und 85% beträgt.

5. Katalysator nach einem Ansprüche 1 bis 4,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der Katalysator (7) ein DeNOx-Katalysator ist.

6. Verfahren zur Reinigung eines Abgases aus einem mit Luftüberschuß arbeitenden Verbrennungsmotor (1) mit einem vorgegebenen Hubraum (3), umfassend das Durchleiten des Abgases

durch einen wabenförmigen Katalysator (7) mit einer Anzahl paralleler Strömungskanäle (9), wobei der Prozentsatz des offenen frontalen Bereichs am Einlaß des Katalysators (7) höchstens 95% beträgt,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das Abgas bei einer Temperatur zwischen 100 und 700°C durch den Katalysator (7) geleitet wird, wobei das Verhältnis des Volumens des Katalysators (7) zum Hubraum (3) des Verbrennungsmotors (1) zwischen 0,5 und 8,0, der hydraulische Durchmesser der Strömungskanäle (9) zwischen 1 und 4 mm und der Prozentsatz des offenen frontalen Bereichs mindestens 45% beträgt.

7. Verfahren nach Anspruch 6,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das Verhältnis des Volumens des Katalysators (7) zum Hubraum (3) des Verbrennungsmotors (1) zwischen 1,0 und 5,0 beträgt.

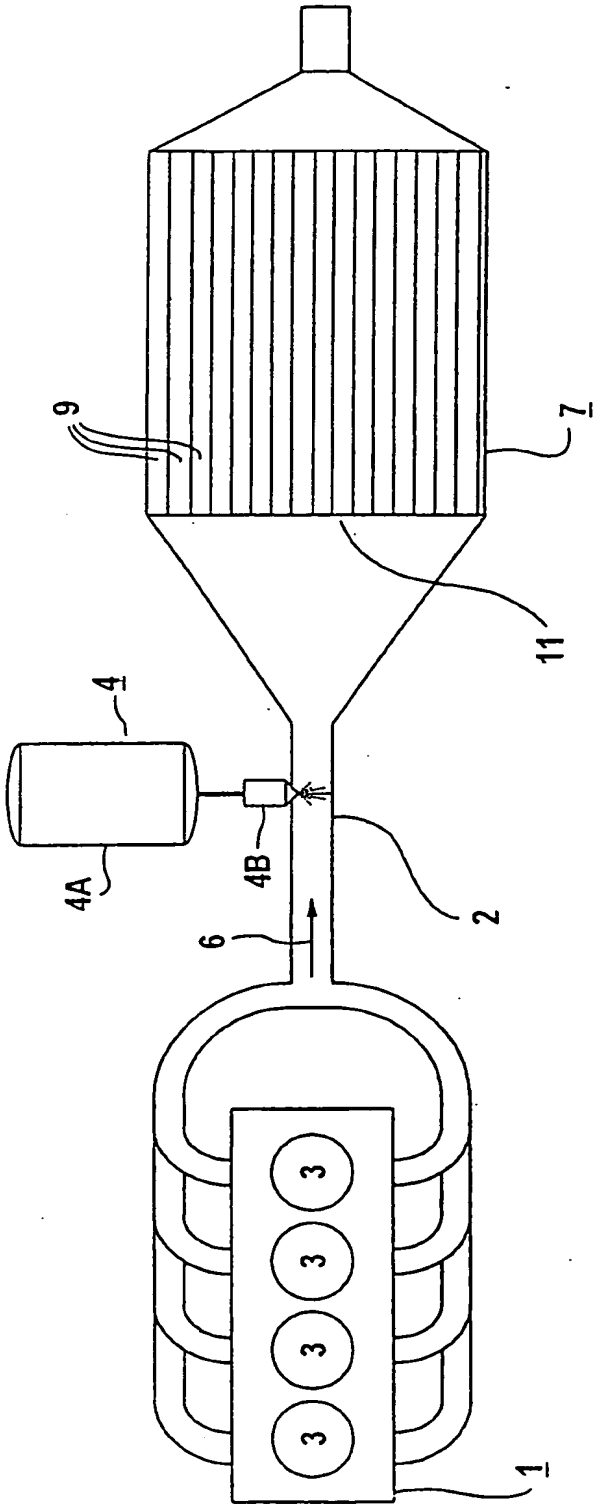
8. Verfahren nach Anspruch 6 oder 7,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der hydraulische Durchmesser der Strömungskanäle (9) zwischen 1,2 und 2,5 mm beträgt.

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 8,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß der Prozentsatz des offenen frontalen Bereichs zwischen 60 und 85% beträgt.

10. Verfahren nach einem Ansprüche 6 bis 9,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß das Abgas durch einen DeNOx-Katalysator geleitet wird.

11. Verfahren nach Anspruch 10,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß dem Abgas vor Durchleitung durch den DeNOx-Katalysator ein Reduktionsmittels zudosiert wird.

1/1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internatic Application No
PCT/EP 98/04086

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 F01N3/28 B01J35/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 F01N B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 382 434 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 16 August 1990 cited in the application see the whole document ---	1,3,4,6, 8,9
A	EP 0 277 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 10 August 1988 see page 6, line 26 - line 46; claims 4-6; figure 2 ---	1-3,5-8, 10,11
A	US 5 272 871 A (OSHIMA YUJIRO ET AL) 28 December 1993 see abstract; figure 6 see column 8, line 6 - line 29 ---	1,2,5-7, 10,11

-/--

[X] Further documents are listed in the continuation of box C.

[X] Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
22 October 1998	30/10/1998

Name and mailing address of the ISA	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Torle, E

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

Printed from Mimosa 00/10/20 11:49:05 Page: 13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internatic Application No
PCT/EP 98/04086

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication,where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 405 (C-539), 26 October 1988 & JP 63 143941 A (NIPPON SHOKUBAI KAGAKU KOGYO CO LTD), 16 June 1988 see abstract -----	1,3-6, 8-11

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

Printed from Mimosa 00/10/20 11:49:08 Page: 14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Info. .tion on patent family members

International application No
PCT/EP 98/04086

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0382434 A	16-08-1990	JP 2207845 A	17-08-1990
		JP 2736099 B	02-04-1998
		AU 628474 B	17-09-1992
		AU 4905090 A	09-08-1990
		CA 2009165 A,C	06-08-1990
		DE 69025345 D	28-03-1996
		DE 69025345 T	11-07-1996
		KR 9600023 B	03-01-1996
		US 5628975 A	13-05-1997
EP 0277765 A	10-08-1988	CA 1298957 A	21-04-1992
		DE 3869150 A	23-04-1992
		JP 2675321 B	12-11-1997
		JP 63302120 A	09-12-1988
		US 4854123 A	08-08-1989
US 5272871 A	28-12-1993	JP 5168856 A	02-07-1993

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internatio s Aktenzeichen
PCT/EP 98/04086

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 F01N3/28 B01J35/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 6 F01N B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 382 434 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 16. August 1990 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ---	1,3,4,6, 8,9
A	EP 0 277 765 A (NIPPON CATALYTIC CHEM IND) 10. August 1988 siehe Seite 6, Zeile 26 - Zeile 46; Ansprüche 4-6; Abbildung 2 ---	1-3,5-8, 10,11
A	US 5 272 871 A (OSHIMA YUJIRO ET AL) 28. Dezember 1993 siehe Zusammenfassung; Abbildung 6 siehe Spalte 8, Zeile 6 - Zeile 29 --- -/--	1,2,5-7, 10,11

[X] Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

[X] Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
22. Oktober 1998	30/10/1998

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Torle, E

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

Printed from Mimosa 00/10/20 11:49:14 Page: 16

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internatic s Aktenzeichen
PCT/EP 98/04086

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 405 (C-539), 26. Oktober 1988 & JP 63 143941 A (NIPPON SHOKUBAI KAGAKU KOGYO CO LTD), 16. Juni 1988 siehe Zusammenfassung	1,3-6, 8-11

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

Printed from Mimosa 00/10/20 11:49:19 Page: 17

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internatior Aktenzeichen
PCT/EP 98/04086

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0382434 A	16-08-1990	JP 2207845 A	17-08-1990
		JP 2736099 B	02-04-1998
		AU 628474 B	17-09-1992
		AU 4905090 A	09-08-1990
		CA 2009165 A,C	06-08-1990
		DE 69025345 D	28-03-1996
		DE 69025345 T	11-07-1996
		KR 9600023 B	03-01-1996
		US 5628975 A	13-05-1997
EP 0277765 A	10-08-1988	CA 1298957 A	21-04-1992
		DE 3869150 A	23-04-1992
		JP 2675321 B	12-11-1997
		JP 63302120 A	09-12-1988
		US 4854123 A	08-08-1989
US 5272871 A	28-12-1993	JP 5168856 A	02-07-1993

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie)(Juli 1992)